

# SEPARATOR FOR FUEL CELL AND ITS MANUFACTURE

Publication number: JP2000077079

Publication date: 2000-02-14

Inventor: YOSHIDA TSUNEMORI

Applicant: NIPPON PILLAR PACKING

Classification:

- international: H01M8/02; H01M8/10; H01M8/02; H01M8/10; (IPC1-7):  
H01M8/02; H01M8/10

- European:

Application number: JP19980245743 19980831

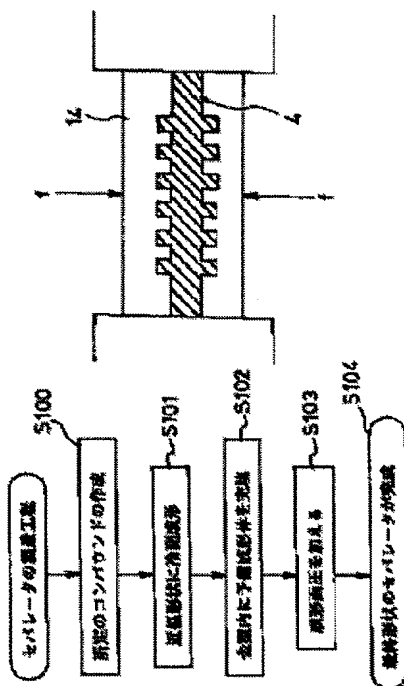
Priority number(s): JP19980245743 19980831

Report a data error here

## Abstract of JP2000077079

PROBLEM TO BE SOLVED: To manufacture a separator with uniform quality and a specified shape, with high conductivity ensured by decreasing resin content.

SOLUTION: Bond carbon set in a composition rate of 85-97% graphite powder and 3-15% thermosetting resin is used, and the compound is directly filled in a mold 14 or a preliminary molded body obtained by cold molding the compound in a shape similar to the final one is filled in the mold 14. Molding surface pressure of 150-1500 kgf/cm<sup>2</sup>, preferably 300-1000 kgf/cm<sup>2</sup> is applied to the compound to mold a separator 4 with a specified shape.



Data supplied from the esp@cenet database - Worldwide

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開2000-77079

(P2000-77079A)

(43) 公開日 平成12年3月14日 (2000.3.14)

(51) Int.Cl.<sup>7</sup>H 0 1 M 8/02  
8/10

識別記号

F I

H 0 1 M 8/02  
8/10

テーマコード\* (参考)

B 5 H 0 2 6

審査請求 有 請求項の数 9 O L (全 11 頁)

(21) 出願番号

特願平10-245743

(22) 出願日

平成10年8月31日 (1998.8.31)

(71) 出願人 000229737

日本ビラー工業株式会社

大阪府大阪市淀川区野中南2丁目11番48号

(72) 発明者 吉田 常盛

兵庫県三田市下内神字打場541番地の1

日本ビラー工業株式会社三田工場内

(74) 代理人 100072338

弁理士 鈴江 孝一 (外1名)

Fターム (参考) 5H026 AA06 BB01 BB02 CC03 CC08

EE06 EE18 HH03 HH05 HH08

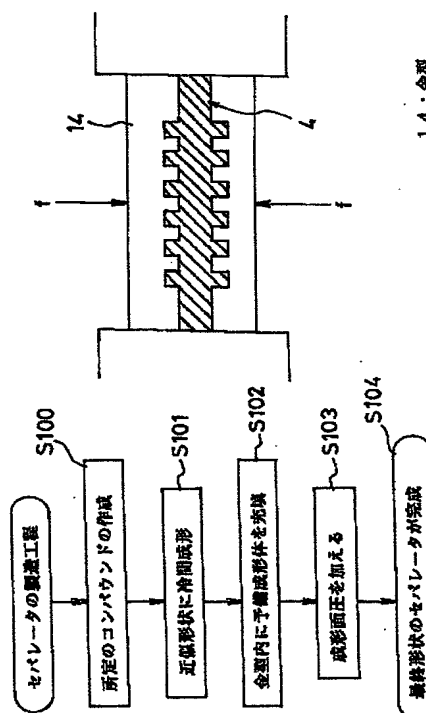
HH09

(54) 【発明の名称】 燃料電池用セパレータ及びその製造方法

(57) 【要約】

【課題】 樹脂量を少なくして良好な導電性を確保しつつ、均質かつ所定形状のセパレータを製造することができるようにする。

【解決手段】 黒鉛粉末85～97%、熱硬化性樹脂3～15%の組成割合に設定されたボンドカーボンを使用し、そのコンパウンドを直接にまたは予め最終形状に近似する形状に冷間成形した予備成形体を金型に充填し、 $150 \sim 1500 \text{ kgf/cm}^2$ 、好ましくは、 $300 \sim 1000 \text{ kgf/cm}^2$  の範囲の成形面圧を加えて所定形状のセパレータに成形する。



## 【特許請求の範囲】

【請求項 1】 黒鉛粉末を熱硬化性樹脂で結合してなる複合体から構成される固体高分子電解質型の燃料電池用セパレータであって、

上記複合体が、黒鉛粉末 85～97%、熱硬化性樹脂 3～15%の組成割合に設定されているとともに、その複合体を 150～1500 kgf/cm<sup>2</sup> の面圧で成形したことを特徴とする燃料電池用セパレータ。

【請求項 2】 上記複合体における熱硬化性樹脂の組成割合が、4～9%の範囲に設定されている請求項 1 に記載の燃料電池用セパレータ。

【請求項 3】 上記複合体の成形面圧が、300～1000 kgf/cm<sup>2</sup> の範囲に設定されている請求項 1 または 2 に記載の燃料電池用セパレータ。

【請求項 4】 上記熱硬化性樹脂が、フェノール樹脂である請求項 1 ないし 3 のいずれかに記載の燃料電池用セパレータ。

【請求項 5】 黒鉛粉末が 85～97%、熱硬化性樹脂が 3～15%の組成割合の複合体を成形して構成される固体高分子型の燃料電池用セパレータの製造方法であって、

上記複合体を予め最終成形形状に近似する形状に冷間成形した後、その予備成形体を金型内に充填し 150～1500 kgf/cm<sup>2</sup> の面圧を加えて最終形状に成形することを特徴とする燃料電池用セパレータの製造方法。

【請求項 6】 上記複合体における熱硬化性樹脂の組成割合は、4～9%の範囲に設定されている請求項 5 に記載の燃料電池用セパレータの製造方法。

【請求項 7】 上記複合体の成形面圧は、300～1000 kgf/cm<sup>2</sup> の範囲に設定されている請求項 5 または 6 に記載の燃料電池用セパレータの製造方法。

【請求項 8】 上記複合体の最終成形温度が、150～170℃の範囲に設定されている請求項 5 ないし 7 のいずれかに記載の燃料電池用セパレータの製造方法。

【請求項 9】 上記予備成形体の成形前の面圧方向寸法が、最終成形体の寸法より 1.0～2.0 倍程度に設定されている請求項 5 ないし 8 のいずれかに記載の燃料電池用セパレータの製造方法。

## 【発明の詳細な説明】

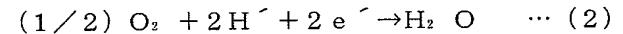
## 【0001】

【発明の属する技術分野】 本発明は、主として電気自動車用の電池として用いられる燃料電池用セパレータ及びその製造方法に関し、詳しくは、イオン交換膜からなる電解質膜を両側からアノード（陽極）及びカソード（陰極）で挟んでサンドイッチ構造としたガス拡散電極をさらにその外部両側から挟むとともに、アノード及びカソードとの間に、燃料ガス流路及び酸化ガス流路を形成して燃料電池の構成単位である単セルを構成するように用いられる固体高分子電解質型の燃料電池用セパレータ

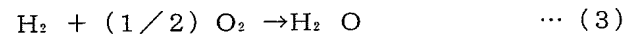
及びその製造方法に関するものである。

## 【0002】

【従来の技術】 燃料電池は、アノードに水素を含有する燃料ガスを供給し、カソードに酸素を含有する酸化ガスを供給することにより、アノード側及びカソード側において、



なる式の電気化学反応を示し、電池全体としては、



なる式の電気化学反応が進行し、このような燃料が有する化学エネルギーを直接電気エネルギーに変換することで、所定の電池性能を発揮するものである。

【0003】 上記のようなエネルギー変換を生じる燃料電池の一種である固体高分子電解質型の燃料電池用セパレータにおいては、ガス不透過性で、かつ、導電性を有する材料から形成することが要求され、その要求に適った材料として、従来から導電性樹脂が用いられている。この導電性樹脂は、黒鉛（カーボン）粉末をフェノール樹脂等の熱硬化性樹脂で結合してなる複合体、通称、ボンドカーボン（樹脂結合質カーボン）コンパウンドであり、これを所定形状に形成することにより燃料電池用セパレータを構成している。

【0004】 ところで、上記の如きボンドカーボンコンパウンドを用いて所定形状の燃料電池用セパレータを形成するにあたって、従来一般には、ボンドカーボンコンパウンドの成形性、作業性を考慮して、フェノール樹脂等の熱硬化性樹脂と黒鉛粉末との組成割合において 25～40%の熱硬化性樹脂を適正量として使用していた。

## 【0005】

【発明が解決しようとする課題】 しかし、上記のような組成割合のボンドカーボンコンパウンドを使用して構成された従来の燃料電池用セパレータにおいては、電気絶縁材である熱硬化性樹脂量が多いために、それだけセパレータ自体の導電性が低下して電気抵抗が増大し、燃料電池の性能面で好ましいものでなかった。

【0006】 一方、ボンドカーボンコンパウンドを使用して構成される燃料電池用セパレータの導電性を向上させるためには、熱硬化性樹脂量を極力少なくするとともに、結晶性が良く、かつ、灰分などの不純物の少ない黒鉛粉末を選定使用する必要があるが、このように樹脂量を少なくすると、成形時のボンドカーボンコンパウンドの伸び、流動性が小さくなって、成形性が悪化する。また、セパレータの導電性の向上には、結晶性の良い黒鉛粉末を用いる必要がある反面、このような結晶性の良い黒鉛粉末は一般に樹脂との濡れ性、結合性が悪く、該黒鉛粉末を使用する場合には、より多くの樹脂を必要とするため、ここで樹脂量を低下させていけばいくほど均質なセパレータが得にくくなる。

【0007】 詳述すると、燃料電池の性能を左右すると

ころのセパレータの導電性を指標する体積抵抗率で考えてみた場合、セパレータの体積抵抗率は  $1 \times 10^{-2} \Omega \cdot \text{cm}$  以下に抑えることが望まれるが、そのような体積抵抗率とするためには、黒鉛との組成割合において樹脂量を 15% 以下に低減する必要がある。しかし、樹脂量を 15% 以下にすると、ボンドカーボンコンパウンドの伸び、流動性が小さくなり、3% 未満ではほとんど流動性のない状態となってしまう。したがって、上記のような樹脂量が 15% 以下のボンドカーボンコンパウンドを使用する場合は、そのコンパウンドを加熱された金型に充填しても、樹脂量の不足により熔融コンパウンドの流動性が十分でないことからコンパウンドが隅々まで行きわたらず、充填状況いかんによっては通常の成形面圧  $100 \sim 150 \text{ kg f/cm}^2$  を越える面圧を加えたとしても、成形むらを生じやすく、形状面で正常な成形体（セパレータ）を得ることができない場合があった。

【0008】本発明は上記実情に鑑みてなされたもので、樹脂量を少なくして良好な導電性を確保しつつ、均質かつ所定形状に形成することができる燃料電池用セパレータ及びその製造方法を提供することを目的としている。

#### 【0009】

【課題を解決するための手段】上記目的を達成するために、請求項 1 に記載の発明に係る燃料電池用セパレータは、黒鉛粉末を熱硬化性樹脂で結合してなる複合体から構成される固体高分子電解質型の燃料電池用セパレータであって、上記複合体が、黒鉛粉末 85%～97%、熱硬化性樹脂 3%～15% の組成割合に設定されているとともに、その複合体を  $150 \sim 1500 \text{ kg f/cm}^2$  の面圧で成形したことを特徴とするものである。

【0010】上記構成の請求項 1 に記載の発明によれば、複合体における組成割合において熱硬化性樹脂を 3%～15% と少なくすることで、複合体自体の導電性を高く保ちつつ、さらに、この複合体に  $150 \sim 1500 \text{ kg f/cm}^2$  の高い成形面圧を加えることで、成形体密度を大きくして体積抵抗率を小さくし、さらに、導電性を向上できるとともに、結晶性の良い黒鉛粉末を使用した場合でもコンパウンドを金型の隅々まで確実に行きわたらせて所望形状のものを均質に成形することが可能となる。

【0011】また、同じく上記目的を達成するために、請求項 5 に記載の発明に係る燃料電池用セパレータの製造方法は、黒鉛粉末が 85%～97%、熱硬化性樹脂が 3%～15% の組成割合の複合体を成形して構成される固体高分子型の燃料電池用セパレータの製造方法であって、上記複合体を予め最終成形形状に近似する形状に冷間成形した後、その予備成形体を金型内に充填し  $150 \sim 1500 \text{ kg f/cm}^2$  の面圧を加えて最終形状に成形することを特徴とするものである。ここで、最終成形形状に近似する形状とは、成形面圧方向以外の形状寸法が最

終成形体の対応する形状寸法と近似することを意味する。予備成形体の成形面圧方向の形状寸法は、最終成形体の寸法より 1.0～2.0 倍程度に設定されていることが好ましい。このような予備成形体を使用することで、成形体密度と体積抵抗率をさらに良化することが可能である。

【0012】上記のような構成の請求項 5 に記載の発明によれば、導電性を高くするために樹脂量を少なくしたことに起因して、伸び、流動性が小さくなり、成形性が悪化する複合体（ボンドカーボンコンパウンド）を予め最終成形形状に近似する形状に冷間成形した上、その予備成形体を金型に充填して  $150 \sim 1500 \text{ kg f/cm}^2$  の高い成形面圧で最終形状に成形するといった二段階成形を採用することにより、伸び、流動性が小さい複合体であっても、この複合体を金型内の隅々まで行きわたらせて成形むらが生じないように、さらに均一に充填させることが可能となり、導電性に優れているだけでなく、均質で、かつ、形状面でも正常なセパレータを得ることができる。

【0013】上記請求項 1 に記載の発明に係る燃料電池用セパレータ及び請求項 5 に記載の発明に係る燃料電池用セパレータの製造方法において、複合体における熱硬化性樹脂の組成割合としては、請求項 2 及び請求項 6 に記載のように、4%～9% の範囲に設定することが体積抵抗率と成形性のからみあいから好ましい。

【0014】また、上記請求項 1 に記載の発明に係る燃料電池用セパレータ及び請求項 5 に記載の発明に係る燃料電池用セパレータの製造方法において、複合体の成形面圧は、請求項 3 及び請求項 7 に記載のように、 $300 \sim 1000 \text{ kg f/cm}^2$  の範囲に設定することが好ましい。すなわち、成形面圧と成形体密度及び体積抵抗率とは、図 5 に示すような相関関係にあり、従来一般に採用されている  $100 \sim 150 \text{ kg f/cm}^2$  の範囲の成形面圧では成形体密度も体積抵抗率も燃料電池用セパレータとして要求される値に達しないけれども、 $300 \sim 1000 \text{ kg f/cm}^2$  の範囲の成形面圧に設定すると、成形体密度も体積抵抗率もほぼ一定値に安定し、最低で  $300 \text{ kg f/cm}^2$  の成形面圧とすることにより、導電性に優れたセパレータを得ることができる。

【0015】さらに、上記請求項 5 に記載の発明に係る燃料電池用セパレータの製造方法において、複合体の最終成形温度を、請求項 8 に記載のように、 $150 \sim 170^\circ\text{C}$  の範囲に設定することにより、樹脂量が少ないことから伸び、流動性が小さくなった複合体の成形時における伸び、流動性等の成形性を補足して所定形状のセパレータを得ることができる。

【0016】なお、本発明で用いられる熱硬化性樹脂としては、黒鉛粉末との濡れ性に優れたフェノール樹脂が最も好ましいが、それ以外に、ポリカルボジイミド樹脂、エポキシ樹脂、フルフリルアルコール樹脂、尿素樹

脂、メラミン樹脂、不飽和ポリエステル樹脂、アルキド樹脂などのように、加熱時に熱硬化反応を起こし、燃料電池の運転温度及び供給ガス成分に対して安定なものであればよい。

【0017】また、本発明で用いられる黒鉛粉末としては、天然黒鉛、人造黒鉛、カーボンブラック、キッシュ黒鉛、膨張黒鉛等いかなる種類のものであってもよく、コストなどの条件を考慮して任意に選択することができる。特に、本発明において膨張黒鉛を用いる場合には、該黒鉛が加熱により体積膨張することで層構造を形成したものであり、成形面圧を加えることによってそれら層が互いに絡み合っ

#### 【0018】

【発明の実施の形態】以下、本発明の実施の形態を図面にもとづいて説明する。まず最初に、本発明のセパレータを備えた固体高分子電解質型燃料電池の構成及び動作について図1～図3を参照して簡単に説明する。固体高分子電解質型燃料電池20は、例えばフッ素系樹脂より形成されたイオン交換膜である電解質膜1と、炭素繊維糸で織成したカーボクロスやカーボンペーパーあるいはカーボンフェルトにより形成され、上記電解質膜1を両側から挟みサンドイッチ構造をなすガス拡散電極となるアノード2及びカソード3と、そのサンドイッチ構造をさらに両側から挟むセパレータ4、4とから構成される単セル5の複数組を積層し、その両端に図示省略した集電板を配置したスタック構造に構成されている。

【0019】上記両セパレータ4は、図2に明示するように、その周辺部に、水素を含有する燃料ガス孔6、7と酸素を含有する酸化ガス孔8、9と冷却水孔10とが形成されており、上記単セル5の複数組を積層した時、各セパレータ4の各孔6、7、8、9、10がそれぞれ燃料電池20内部をその長手方向に貫通して燃料ガス供給マニホールド、燃料ガス排出マニホールド、酸化ガス供給マニホールド、酸化ガス排出マニホールド、冷却水路を形成するようになされている。

【0020】また、上記両セパレータ4の表面には、所定形状のリップ部11が形成されており、そのリップ部11とアノード2の表面との間に燃料ガス流路12が形成されているとともに、リップ部11とカソード3の表面との間に酸化ガス流路13が形成されている。

【0021】上記構成の固体高分子電解質型燃料電池20においては、外部に設けられた燃料ガス供給装置から燃料電池20に対して供給された水素を含有する燃料ガスが上記燃料ガス供給マニホールドを経由して各単セル5の燃料ガス流路12に供給されて各単セル5のアノード2側において既述(1)式で示したとおりの電気化学反応を呈し、その反応後の燃料ガスは各単セル5の燃料ガス流路12から上記燃料ガス排出マニホールドを経由

して外部に排出される。同時に、外部に設けられた酸化ガス供給装置から燃料電池20に対して供給された酸素を含有する酸化ガス(空気)が上記酸化ガス供給マニホールドを経由して各単セル5の酸化ガス流路13に供給されて各単セル5のカソード3側において既述(2)式で示したとおりの電気化学反応を呈し、その反応後の酸化ガスは各単セル5の酸化ガス流路13から上記酸化ガス排出マニホールドを経由して外部に排出される。

【0022】上記(1)及び(2)式の電気化学反応に伴い、燃料電池20全体としては既述(3)式で示した電気化学反応が進行して、燃料が有する化学エネルギーを直接電気エネルギーに変換することで、所定の電池性能が発揮される。なお、この燃料電池20は、電解質膜1の性質から約80～100℃の温度範囲で運転されるために発熱を伴う。そこで、燃料電池20の運転中は、外部に設けられた冷却水供給装置から該燃料電池20に対して冷却水を供給し、これを上記冷却水路に循環させることによって、燃料電池20内部の温度上昇を抑制している。

【0023】次に、上記のような構成及び動作を有する固体高分子電解質型燃料電池20におけるセパレータ4の製造方法について説明する。このセパレータ4は、黒鉛粉末85～97%、熱硬化性樹脂3～15%の組成割合に設定した複合体(ボンドカーボン)を用いて成形されるものであって、上記黒鉛粉末と熱硬化性樹脂とを均一に混合し調整して所定のコンパウンドを作成する(ステップS100)。ついで、このコンパウンドに100～150kgf/cm<sup>2</sup>の範囲の面圧を加えて、予め最終成形形状に近似する形状に冷間成形する(ステップS101)。続いて、その予備成形体を図4に示すように、所定の最終形状を持つ金型14内に充填する(ステップS102)。この状態で、金型14を150～170℃に加熱昇温するとともに、図外のプレスを動作させ図4中の矢印f方向から150～1500kgf/cm<sup>2</sup>、好ましくは、300～1000kgf/cm<sup>2</sup>の範囲の面圧を加えることにより(ステップS103)、金型14の形状に応じた最終形状のセパレータ4が製造される(ステップS104)。

【0024】上記のようにして製造されるセパレータ4においては、該セパレータ4の構成材料であるボンドカーボンにおける組成割合において熱硬化性樹脂が3～15%と少ないために、ボンドカーボン自体の導電性が高く、さらに、このボンドカーボンのコンパウンドを最終形状に近似する形状に予備成形した上、その予備成形体を金型14に充填し150～170℃に加熱昇温しながら、150～1500kgf/cm<sup>2</sup>の高い成形面圧を加えることで、熱硬化性樹脂が溶解するとともに熱硬化反応が起こり、成形体密度が大きく、かつ、体積抵抗率が小さい所定形状のセパレータ4に均質に成形することができる。また、樹脂量を少なくすることと、成形面圧

を高くすることの相乗により導電性が高いセパレータ 4  
とすることができる。

【0025】以下、実施例によって本発明を更に詳しく  
説明する。

＜比較例＞人造黒鉛 SGS-35（エス・イー・シー株  
式会社製）62%、フェノール樹脂 38%の組成割合の  
ボンドカーボンコンパウンドを作成し、このコンパウ  
ンドを金型に充填して、160℃の成形温度下で150k  
gf/cm<sup>2</sup>の成形面圧を2分間加えて所定形状のセパ  
レータを製造した。

＜実施例1＞天然黒鉛 SN-100C（エス・イー・シ  
ー株式会社製）85%、フェノール樹脂 15%の組成割  
合のボンドカーボンコンパウンドを作成し、このコンパ  
ウンドを直接金型に充填して、160℃の成形温度下で  
150～1500kgf/cm<sup>2</sup>の成形面圧を2分間加  
えて所定形状のセパレータを製造した。

＜実施例2＞天然黒鉛 SN-100C（エス・イー・シ  
ー株式会社製）94%、フェノール樹脂 6%の組成割合  
のボンドカーボンコンパウンドを作成し、このコンパウ\*

\*ンドに100kgf/cm<sup>2</sup>の成形面圧を加えて最終形  
状に近似する形状に冷間成形した後、そのタブレット状  
の固形コンパウンドを金型に充填して、160℃の成形  
温度下で500kgf/cm<sup>2</sup>の成形面圧を2分間加え  
て所定形状のセパレータを製造した。

＜実施例3＞人造黒鉛 SGP-100（エス・イー・シ  
ー株式会社製）94%、フェノール樹脂 6%の組成割合  
のボンドカーボンコンパウンドを作成し、このコンパウ  
ンドに150kgf/cm<sup>2</sup>の成形面圧を加えて最終形  
状に近似する形状に冷間成形した後、そのタブレット状  
の固形コンパウンドを金型に充填して、160℃の成形  
温度下で1000kgf/cm<sup>2</sup>の成形面圧を2分間加  
えて所定形状のセパレータを製造した。

【0026】そして、上記比較例及び実施例1～3で製  
造された各セパレータそれぞれの体積抵抗率、曲げ強度  
を測定したところ、表1に示すような結果が得られた。

【0027】

【表1】

試料	比較例	実施例1	実施例2	実施例3
測定項目				
体積抵抗率(Ω・cm)	3.5×10 <sup>-1</sup>	5.8×10 <sup>-3</sup>	2.9×10 <sup>-3</sup>	4.8×10 <sup>-3</sup>
曲げ強度(kgf/cm <sup>2</sup> )	400	440	360	310

【0028】上記表1の結果からも明らかなように、本  
発明の実施例1～3のごとく樹脂量を少なくし、かつ、  
成形面圧を大きくして製造されたセパレータは、比較例  
のごとく樹脂量を多くし、かつ、成形面圧を小さくして  
製造されたセパレータに比べて、同等あるいは遜色のな  
い曲げ強度を確保しつつ、成形体密度が大きいことから  
体積抵抗率を低下させて導電性の向上を図ることができ  
る。

【0029】なお、実施例1で示したように、樹脂量を  
設定範囲の最大の15%とする場合は、伸び、流動性の  
低下が少ないために、予備成形をなくしてそのコンパウ  
ンドを直接金型に充填し150～1500kgf/cm<sup>2</sup>  
以上の成形面圧を加えることで、所定どおり導電性に  
優れ、かつ均質なセパレータを生産性よく製造すること  
が可能である。

【0030】

【発明の効果】以上のように、請求項1及び請求項5に  
記載の発明によれば、黒鉛粉末と熱硬化性樹脂からなる  
複合体における組成割合で熱硬化性樹脂を3～15%と  
少なくすることと、その複合体に150～1500kgf/cm<sup>2</sup>  
の高い成形面圧を加えて成形密度を大きくする  
こととの相乗によって、セパレータ全体の体積抵抗率  
を小さくして非常に優れた導電性を確保することができ  
るとともに、結晶性の良い黒鉛粉末を用いた場合でも形  
状面で所定形状の均質セパレータを確実に得ることがで

きるという効果を奏する。

【0031】特に、請求項5に記載の発明のような予備  
成形を含む二段階成形を採用することにより、樹脂量が  
少なくても伸び、流動性が小さい複合体を用いながらも、  
最終成形時にはその複合体を金型内の隅々まで行きわた  
らせて成形むらが生じないように均一に充填させること  
が可能で、一層均質で、かつ、正常な形状のセパレータ  
を得ることができる。

【図面の簡単な説明】

【図1】本発明のセパレータを備えた固体高分子電解質  
型燃料電池を構成するスタック構造の構成を示す分解斜  
視図である。

【図2】同上固体高分子電解質型燃料電池におけるセパ  
レータの外観正面図である。

【図3】同上固体高分子電解質型燃料電池の構成単位で  
ある単セルの構成を示す要部の拡大断面図である。

【図4】同上セパレータの製造工程及び製造の様子を説  
明する説明図である。

【図5】実施例2によるセパレータの製造時における成  
形面圧と体積抵抗率及び成形体密度との相関関係を示す  
説明図である。

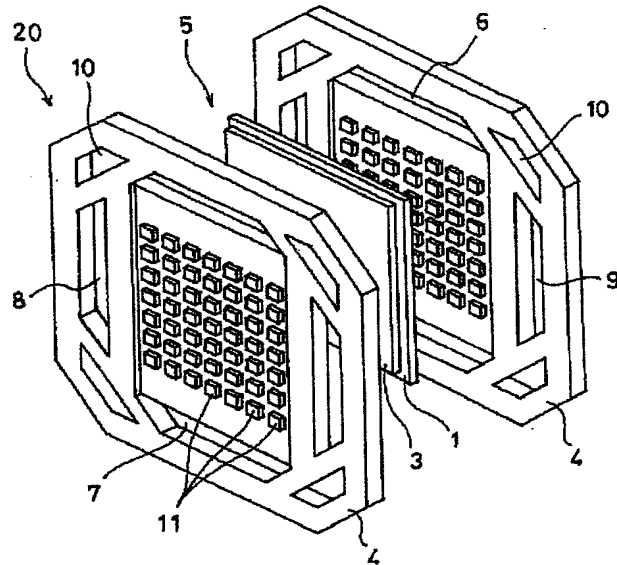
【符号の説明】

- 1 電解質膜
- 2 アノード
- 3 カソード

- 4 セパレータ  
5 単セル

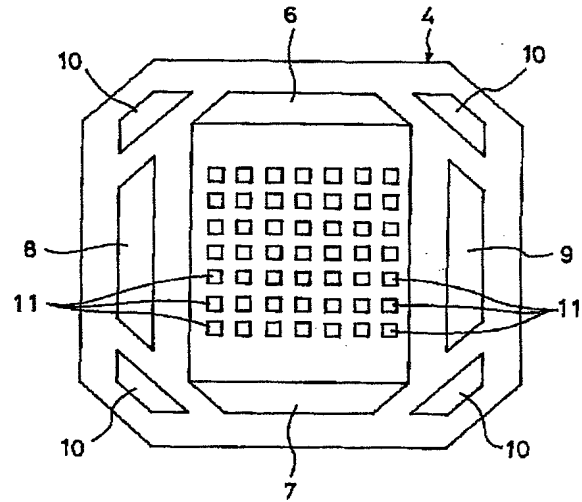
- \* 14 金型  
\* 20 固体高分子電解質型燃料電池

【図1】

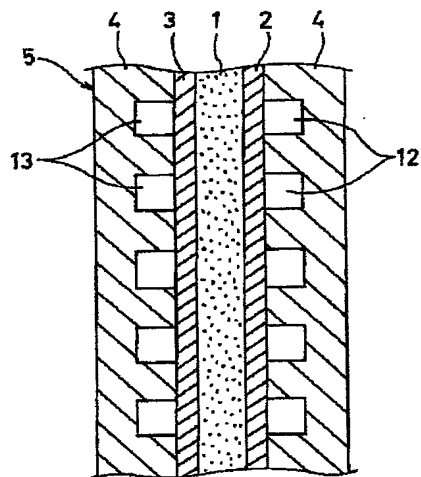


- 1 : 電解質膜  
3 : カソード  
4 : セパレータ  
5 : 単セル

【図2】

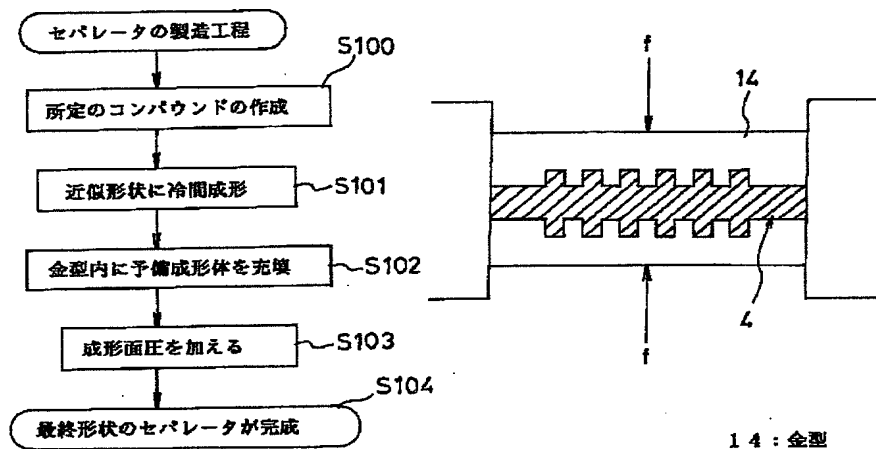


【図3】

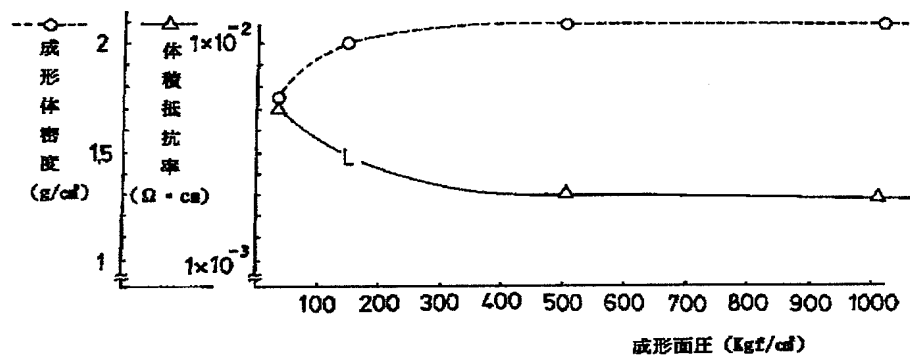


- 2 : アノード

【図4】



【図5】



## 【手続補正書】

【提出日】平成11年7月12日（1999. 7. 12）

## 【手続補正1】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】全文

【補正方法】変更

【補正内容】

【書類名】明細書

【発明の名称】燃料電池用セパレータ及びその製造方法

## 【特許請求の範囲】

【請求項1】 黒鉛粉末を熱硬化性樹脂で結合してなる複合体から構成される固体高分子電解質型の燃料電池用セパレータであって、

上記複合体が、黒鉛粉末85～97%、熱硬化性樹脂3

～15%の組成割合に設定されているとともに、その複合体を予め100～150kgf/cm<sup>2</sup>の範囲の面圧で冷間成形し、得られた予備成形体を150～1500kgf/cm<sup>2</sup>の面圧で成形したことを特徴とする燃料電池用セパレータ。

【請求項2】 上記複合体における熱硬化性樹脂の組成割合が、4～9%の範囲に設定されている請求項1に記載の燃料電池用セパレータ。

【請求項3】 上記複合体の成形面圧が、300～1000kgf/cm<sup>2</sup>の範囲に設定されている請求項1または2に記載の燃料電池用セパレータ。

【請求項4】 上記熱硬化性樹脂が、フェノール樹脂である請求項1ないし3のいずれかに記載の燃料電池用セパレータ。

【請求項5】 黒鉛粉末が85～97%、熱硬化性樹脂



が 3 ～ 15 % の組成割合の複合体を成形して構成される固体高分子型の燃料電池用セパレータの製造方法であつて、

上記複合体を  $100 \sim 150 \text{ kg f / cm}^2$  の範囲の面圧により予め最終成形形状に近似する形状に冷間成形した後、

その予備成形体を金型内に充填し  $150 \sim 1500 \text{ kg f / cm}^2$  の面圧を加えて最終形状に成形することの特徴とする燃料電池用セパレータの製造方法。

【請求項 6】 上記複合体における熱硬化性樹脂の組成割合は、4 ～ 9 % の範囲に設定されている請求項 5 に記載の燃料電池用セパレータの製造方法。

【請求項 7】 上記複合体の成形面圧は、 $300 \sim 1000 \text{ kg f / cm}^2$  の範囲に設定されている請求項 5 または 6 に記載の燃料電池用セパレータの製造方法。

【請求項 8】 上記複合体の最終成形温度が、 $150 \sim 170^\circ\text{C}$  の範囲に設定されている請求項 5 ないし 7 のいずれかに記載の燃料電池用セパレータの製造方法。

【請求項 9】 上記予備成形体の成形前の面圧方向寸法が、最終成形体の寸法より 1.0 ～ 2.0 倍程度に設定されている請求項 5 ないし 8 のいずれかに記載の燃料電池用セパレータの製造方法。

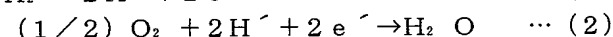
【発明の詳細な説明】

【0001】

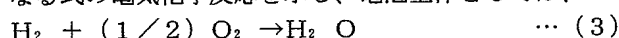
【発明の属する技術分野】 本発明は、主として電気自動車用の電池として用いられる燃料電池用セパレータ及びその製造方法に関し、詳しくは、イオン交換膜からなる電解質膜を両側からアノード（陽極）及びカソード（陰極）で挟んでサンドイッチ構造としたガス拡散電極をさらにその外部両側から挟むとともに、アノード及びカソードとの間に、燃料ガス流路及び酸化ガス流路を形成して燃料電池の構成単位である単セルを構成するように用いられる固体高分子電解質型の燃料電池用セパレータ及びその製造方法に関するものである。

【0002】

【従来の技術】 燃料電池は、アノードに水素を含有する燃料ガスを供給し、カソードに酸素を含有する酸化ガスを供給することにより、アノード側及びカソード側において、



なる式の電気化学反応を示し、電池全体としては、



なる式の電気化学反応が進行し、このような燃料が有する化学エネルギーを直接電気エネルギーに変換することで、所定の電池性能を発揮するものである。

【0003】 上記のようなエネルギー変換を生じる燃料電池の一種である固体高分子電解質型の燃料電池用セパレータにおいては、ガス不透過性で、かつ、導電性を有する材料から形成することが要求され、その要求に適つ

た材料として、従来から導電性樹脂が用いられている。この導電性樹脂は、黒鉛（カーボン）粉末をフェノール樹脂等の熱硬化性樹脂で結合してなる複合体、通称、ボンドカーボン（樹脂結合質カーボン）コンパウンドであり、これを所定形状に形成することにより燃料電池用セパレータを構成している。

【0004】 ところで、上記の如きボンドカーボンコンパウンドを用いて所定形状の燃料電池用セパレータを形成するにあたって、従来一般には、ボンドカーボンコンパウンドの成形性、作業性を考慮して、フェノール樹脂等の熱硬化性樹脂と黒鉛粉末との組成割合において 25 ～ 40 % の熱硬化性樹脂を適正量として使用していた。

【0005】

【発明が解決しようとする課題】 しかし、上記のような組成割合のボンドカーボンコンパウンドを使用して構成された従来の燃料電池用セパレータにおいては、電気絶縁材である熱硬化性樹脂量が多いために、それだけセパレータ自体の導電性が低下して電気抵抗が増大し、燃料電池の性能面で好ましいものでなかった。

【0006】 一方、ボンドカーボンコンパウンドを使用して構成される燃料電池用セパレータの導電性を向上させるためには、熱硬化性樹脂量を極力少なくするとともに、結晶性が良く、かつ、灰分などの不純物の少ない黒鉛粉末を選定使用する必要があるが、このように樹脂量を少なくすると、成形時のボンドカーボンコンパウンドの伸び、流動性が小さくなって、成形性が悪化する。また、セパレータの導電性の向上には、結晶性の良い黒鉛粉末を用いる必要がある反面、このような結晶性の良い黒鉛粉末は一般に樹脂との濡れ性、結合性が悪く、該黒鉛粉末を使用する場合には、より多くの樹脂を必要とするため、ここで樹脂量を低下させていけばいくほど均質なセパレータが得にくくなる。

【0007】 詳述すると、燃料電池の性能を左右するところのセパレータの導電性を指標する体積抵抗率で考えてみた場合、セパレータの体積抵抗率は  $1 \times 10^{-2} \Omega \cdot \text{cm}$  以下に抑えることが望まれるが、そのような体積抵抗率とするためには、黒鉛との組成割合において樹脂量を 15 % 以下に低減する必要がある。しかし、樹脂量を 15 % 以下にすると、ボンドカーボンコンパウンドの伸び、流動性が小さくなり、3 % 未満ではほとんど流動性のない状態となってしまう。したがって、上記のような樹脂量が 15 % 以下のボンドカーボンコンパウンドを使用する場合は、そのコンパウンドを加熱された金型に充填しても、樹脂量の不足により熔融コンパウンドの流動性が十分でないことからコンパウンドが隅々まで行きわたらず、充填状況いかんによっては通常の成形面圧  $100 \sim 150 \text{ kg f / cm}^2$  を越える面圧を加えたとしても、成形むらを生じやすく、形状面で正常な成形体（セパレータ）を得ることができない場合があった。

【0008】 本発明は上記実情に鑑みてなされたもの

で、樹脂量を少なくして良好な導電性を確保しつつ、均質かつ所定形状に形成することができる燃料電池用セパレータ及びその製造方法を提供することを目的としている。

#### 【0009】

【課題を解決するための手段】上記目的を達成するために、請求項1に記載の発明に係る燃料電池用セパレータは、黒鉛粉末を熱硬化性樹脂で結合してなる複合体から構成される固体高分子電解質型の燃料電池用セパレータであって、上記複合体が、黒鉛粉末85～97%、熱硬化性樹脂3～15%の組成割合に設定されているとともに、その複合体を予め100～150 kgf/cm<sup>2</sup>の範囲の面圧で冷間成形し、得られた予備成形体を150～1500 kgf/cm<sup>2</sup>の面圧で成形したことを特徴とするものである。

【0010】上記構成の請求項1に記載の発明によれば、複合体における組成割合において熱硬化性樹脂を3～15%と少なくすることで、複合体自体の導電性を高く保ちつつ、さらに、この複合体を予め100～150 kgf/cm<sup>2</sup>の範囲の面圧で冷間成形し、得られた予備成形体に150～1500 kgf/cm<sup>2</sup>の高い成形面圧を加えることで、成形体密度を大きくして体積抵抗率を小さくし、さらに、導電性を向上できるとともに、結晶性の良い黒鉛粉末を使用した場合でもコンパウンドを金型の隅々まで確実に行きわたらせて所望形状のものを均質に形成することが可能となる。

【0011】また、同じく上記目的を達成するために、請求項5に記載の発明に係る燃料電池用セパレータの製造方法は、黒鉛粉末が85～97%、熱硬化性樹脂が3～15%の組成割合の複合体を成形して構成される固体高分子型の燃料電池用セパレータの製造方法であって、上記複合体を100～150 kgf/cm<sup>2</sup>の範囲の面圧により予め最終成形形状に近似する形状に冷間成形した後、その予備成形体を金型内に充填し150～1500 kgf/cm<sup>2</sup>の面圧を加えて最終形状に成形することを特徴とするものである。ここで、最終成形形状に近似する形状とは、成形面圧方向以外の形状寸法が最終成形体の対応する形状寸法と近似することを意味する。予備成形体の成形面圧方向の形状寸法は、最終成形体の寸法より1.0～2.0倍程度に設定されていることが好ましい。このような予備成形体を使用することで、成形体密度と体積抵抗率をさらに良化することが可能である。

【0012】上記のような構成の請求項5に記載の発明によれば、導電性を高くするために樹脂量を少なくしたことに起因して、伸び、流動性が小さくなり、成形性が悪化する複合体（ボンドカーボンコンパウンド）を100～150 kgf/cm<sup>2</sup>の範囲の面圧により予め最終成形形状に近似する形状に冷間成形した上、その予備成形体を金型に充填して150～1500 kgf/cm<sup>2</sup>

の高い成形面圧で最終形状に成形するといった二段階成形を採用することにより、伸び、流動性が小さい複合体であっても、この複合体を金型内の隅々まで行きわたらせて成形むらが生じることを極力抑制しながら、成形体密度を大きくし、さらに均一に充填させることが可能となり、導電性に優れているだけでなく、均質で、かつ、形状面でも正常なセパレータを得ることができる。

【0013】上記請求項1に記載の発明に係る燃料電池用セパレータ及び請求項5に記載の発明に係る燃料電池用セパレータの製造方法において、複合体における熱硬化性樹脂の組成割合としては、請求項2及び請求項6に記載のように、4～9%の範囲に設定することが体積抵抗率と成形性のからみあいから好ましい。

【0014】また、上記請求項1に記載の発明に係る燃料電池用セパレータ及び請求項5に記載の発明に係る燃料電池用セパレータの製造方法において、複合体の成形面圧は、請求項3及び請求項7に記載のように、300～1000 kgf/cm<sup>2</sup>の範囲に設定することが好ましい。すなわち、成形面圧と成形体密度及び体積抵抗率とは、図5に示すような相関関係にあり、従来一般に採用されている100～150 kgf/cm<sup>2</sup>の範囲の成形面圧では成形体密度も体積抵抗率も燃料電池用セパレータとして要求される値に達しないけれども、300～1000 kgf/cm<sup>2</sup>の範囲の成形面圧に設定すると、成形体密度も体積抵抗率もほぼ一定値に安定し、最低で300 kgf/cm<sup>2</sup>の成形面圧とすることにより、導電性に優れたセパレータを得ることができる。

【0015】さらに、上記請求項5に記載の発明に係る燃料電池用セパレータの製造方法において、複合体の最終成形温度を、請求項8に記載のように、150～170℃の範囲に設定することにより、樹脂量が少ないことから伸び、流動性が小さくなった複合体の成形時における伸び、流動性等の成形性を補足して所定形状のセパレータを得ることができる。

【0016】なお、本発明で用いられる熱硬化性樹脂としては、黒鉛粉末との濡れ性に優れたフェノール樹脂が最も好ましいが、それ以外に、ポリカルボジイミド樹脂、エポキシ樹脂、フルフリルアルコール樹脂、尿素樹脂、メラミン樹脂、不飽和ポリエステル樹脂、アルキド樹脂などのように、加熱時に熱硬化反応を起こし、燃料電池の運転温度及び供給ガス成分に対して安定なものであればよい。

【0017】また、本発明で用いられる黒鉛粉末としては、天然黒鉛、人造黒鉛、カーボンブラック、キッシュ黒鉛、膨張黒鉛等いかなる種類のものであってもよく、コストなどの条件を考慮して任意に選択することができる。特に、本発明において膨張黒鉛を用いる場合には、該黒鉛が加熱により体積膨張することで層構造を形成したものであり、成形面圧を加えることによってそれら層が互いに絡み合っただけで強固に結合させることが可能である

ために、熱硬化性樹脂の割合を少なくする複合体において有効である。

#### 【0018】

【発明の実施の形態】以下、本発明の実施の形態を図面にもとづいて説明する。まず最初に、本発明のセパレータを備えた固体高分子電解質型燃料電池の構成及び動作について図1～図3を参照して簡単に説明する。固体高分子電解質型燃料電池20は、例えばフッ素系樹脂より形成されたイオン交換膜である電解質膜1と、炭素繊維糸で織成したカーボクロスやカーボンペーパーあるいはカーボンフェルトにより形成され、上記電解質膜1を両側から挟みサンドイッチ構造をなすガス拡散電極となるアノード2及びカソード3と、そのサンドイッチ構造をさらに両側から挟むセパレータ4、4とから構成される単セル5の複数組を積層し、その両端に図示省略した集電板を配置したスタック構造に構成されている。

【0019】上記両セパレータ4は、図2に明示するように、その周辺部に、水素を含有する燃料ガス孔6、7と酸素を含有する酸化ガス孔8、9と冷却水孔10とが形成されており、上記単セル5の複数組を積層した時、各セパレータ4の各孔6、7、8、9、10がそれぞれ燃料電池20内部をその長手方向に貫通して燃料ガス供給マニホールド、燃料ガス排出マニホールド、酸化ガス供給マニホールド、酸化ガス排出マニホールド、冷却水路を形成するようになされている。

【0020】また、上記両セパレータ4の表面には、所定形状のリップ部11が形成されており、そのリップ部11とアノード2の表面との間に燃料ガス流路12が形成されているとともに、リップ部11とカソード3の表面との間に酸化ガス流路13が形成されている。

【0021】上記構成の固体高分子電解質型燃料電池20においては、外部に設けられた燃料ガス供給装置から燃料電池20に対して供給された水素を含有する燃料ガスが上記燃料ガス供給マニホールドを経由して各単セル5の燃料ガス流路12に供給されて各単セル5のアノード2側において既述(1)式で示したとおりの電気化学反応を呈し、その反応後の燃料ガスは各単セル5の燃料ガス流路12から上記燃料ガス排出マニホールドを経由して外部に排出される。同時に、外部に設けられた酸化ガス供給装置から燃料電池20に対して供給された酸素を含有する酸化ガス(空気)が上記酸化ガス供給マニホールドを経由して各単セル5の酸化ガス流路13に供給されて各単セル5のカソード3側において既述(2)式で示したとおりの電気化学反応を呈し、その反応後の酸化ガスは各単セル5の酸化ガス流路13から上記酸化ガス排出マニホールドを経由して外部に排出される。

【0022】上記(1)及び(2)式の電気化学反応に伴い、燃料電池20全体としては既述(3)式で示した電気化学反応が進行して、燃料が有する化学エネルギーを直接電気エネルギーに変換することで、所定の電池性

能が発揮される。なお、この燃料電池20は、電解質膜1の性質から約80～100℃の温度範囲で運転されるために発熱を伴う。そこで、燃料電池20の運転中は、外部に設けられた冷却水供給装置から該燃料電池20に対して冷却水を供給し、これを上記冷却水路に循環させることによって、燃料電池20内部の温度上昇を抑制している。

【0023】次に、上記のような構成及び動作を有する固体高分子電解質型燃料電池20におけるセパレータ4の製造方法について説明する。このセパレータ4は、黒鉛粉末85～97%、熱硬化性樹脂3～15%の組成割合に設定した複合体(ボンドカーボン)を用いて成形されるものであって、上記黒鉛粉末と熱硬化性樹脂とを均一に混合し調整して所定のコンパウンドを作成する(ステップS100)。ついで、このコンパウンドに100～150kgf/cm<sup>2</sup>の範囲の面圧を加えて、予め最終成形形状に近似する形状に冷間成形する(ステップS101)。続いて、その予備成形体を図4に示すように、所定の最終形状を持つ金型14内に充填する(ステップS102)。この状態で、金型14を150～170℃に加熱昇温するとともに、図外のプレスを動作させ図4中の矢印f方向から150～1500kgf/cm<sup>2</sup>、好ましくは、300～1000kgf/cm<sup>2</sup>の範囲の面圧を加えることにより(ステップS103)、金型14の形状に応じた最終形状のセパレータ4が製造される(ステップS104)。

【0024】上記のようにして製造されるセパレータ4においては、該セパレータ4の構成材料であるボンドカーボンにおける組成割合において熱硬化性樹脂が3～15%と少ないために、ボンドカーボン自体の導電性が高く、さらに、このボンドカーボンのコンパウンドを最終形状に近似する形状に予備成形した上、その予備成形体を金型14に充填し150～170℃に加熱昇温しながら、150～1500kgf/cm<sup>2</sup>の高い成形面圧を加えることで、熱硬化性樹脂が溶解するとともに熱硬化反応が起こり、成形体密度が大きく、かつ、体積抵抗率が小さい所定形状のセパレータ4に均質に成形することができる。また、樹脂量を少なくすることと、成形面圧を高くすることの相乗により導電性が高いセパレータ4とすることができる。

【0025】以下、実施例によって本発明を更に詳しく説明する。

<比較例>人造黒鉛SGS-35(エス・イー・シー株式会社製)62%、フェノール樹脂38%の組成割合のボンドカーボンコンパウンドを作成し、このコンパウンドを金型に充填して、160℃の成形温度下で150kgf/cm<sup>2</sup>の成形面圧を2分間加えて所定形状のセパレータを製造した。

<実施例1>天然黒鉛SN-100C(エス・イー・シー株式会社製)85%、フェノール樹脂15%の組成割

合のボンドカーボンコンパウンドを作成し、このコンパウンドを直接金型に充填して、160℃の成形温度下で150～1500 kgf/cm<sup>2</sup>の成形面圧を2分間加えて所定形状のセパレータを製造した。

＜実施例2＞天然黒鉛SN-100C（エス・イー・シー株式会社製）94%、フェノール樹脂6%の組成割合のボンドカーボンコンパウンドを作成し、このコンパウンドに100 kgf/cm<sup>2</sup>の成形面圧を加えて最終形状に近似する形状に冷間成形した後、そのタブレット状の固形コンパウンドを金型に充填して、160℃の成形温度下で500 kgf/cm<sup>2</sup>の成形面圧を2分間加えて所定形状のセパレータを製造した。

＜実施例3＞人造黒鉛SGP-100（エス・イー・シ\*

\*一株式会社製）94%、フェノール樹脂6%の組成割合のボンドカーボンコンパウンドを作成し、このコンパウンドに150 kgf/cm<sup>2</sup>の成形面圧を加えて最終形状に近似する形状に冷間成形した後、そのタブレット状の固形コンパウンドを金型に充填して、160℃の成形温度下で1000 kgf/cm<sup>2</sup>の成形面圧を2分間加えて所定形状のセパレータを製造した。

【0026】そして、上記比較例及び実施例1～3で製造された各セパレータそれぞれの体積抵抗率、曲げ強度を測定したところ、表1に示すような結果が得られた。

【0027】

【表1】

測定項目 \ 試料	比較例	実施例1	実施例2	実施例3
体積抵抗率(Ω・cm)	$3.5 \times 10^{-1}$	$5.8 \times 10^{-3}$	$2.9 \times 10^{-3}$	$4.8 \times 10^{-3}$
曲げ強度(kgf/cm <sup>2</sup> )	400	440	360	310

【0028】上記表1の結果からも明らかなように、本発明の実施例1～3のごとく樹脂量を少なくし、かつ、成形面圧を大きくして製造されたセパレータは、比較例のごとく樹脂量を多くし、かつ、成形面圧を小さくして製造されたセパレータに比べて、同等あるいは遜色のない曲げ強度を確保しつつ、成形体密度が大きいことから体積抵抗率を低下させて導電性の向上を図ることができる。

【0029】なお、実施例1で示したように、樹脂量を設定範囲の最大の15%とする場合は、伸び、流動性の低下が少ないために、予備成形をなくしてそのコンパウンドを直接金型に充填し150～1500 kgf/cm<sup>2</sup>以上の成形面圧を加えることで、所定どおり導電性に優れ、かつ均質なセパレータを生産性よく製造することが可能である。

【0030】

【発明の効果】以上のように、請求項1及び請求項5に記載の発明によれば、黒鉛粉末と熱硬化性樹脂からなる複合体における組成割合で熱硬化性樹脂を3～15%と少なくすることと、その複合体を100～150 kgf/cm<sup>2</sup>の範囲の面圧で予め冷間成形し、さらにその予備成形体に150～1500 kgf/cm<sup>2</sup>の高い成形面圧を加えて成形密度を大きくすることとの相乗によって、セパレータ全体の体積抵抗率を小さくして非常に優れた導電性を確保することができるとともに、結晶性の良い黒鉛粉末を用いた場合でも形状面で所定形状の均質セパレータを確実に得ることができるという効果を奏する。

【0031】特に、請求項5に記載の発明のような予備成形を含む二段階成形を採用することにより、樹脂量が少なく伸び、流動性が小さい複合体を用いながらも、最終成形時にはその複合体を金型内の隅々まで行きわたらせて成形むらが生じないように均一に充填させることが可能で、一層均質で、かつ、正常な形状のセパレータを得ることができる。

【図面の簡単な説明】

【図1】本発明のセパレータを備えた固体高分子電解質型燃料電池を構成するスタック構造の構成を示す分解斜視図である。

【図2】同上固体高分子電解質型燃料電池におけるセパレータの外観正面図である。

【図3】同上固体高分子電解質型燃料電池の構成単位である単セルの構成を示す要部の拡大断面図である。

【図4】同上セパレータの製造工程及び製造の様子を説明する説明図である。

【図5】実施例2によるセパレータの製造時における成形面圧と体積抵抗率及び成形体密度との相関関係を示す説明図である。

【符号の説明】

- 1 電解質膜
- 2 アノード
- 3 カソード
- 4 セパレータ
- 5 単セル
- 14 金型
- 20 固体高分子電解質型燃料電池